BUNDESREPÜBLIK: DEUTSPHLAND:

PRIORITY
DOCUMENT
SUBMITTED OR TRANSMITTED IN
COMPLIANCE WITH RULE 17.1(a) OR (b)



REC'D 0 S NOV 1999

WIPO PCT

E199/7151

EU

## **Bescheinigung**

Die PREDINAL GmbH in Bitterfeld/Deutschland hat eine Patentanmeldung unter der Bezeichnung

"Mittel zur Abwehr und Inaktivierung pathogener Erreger von Pflanzenwurzeln, -stengeln, -blüten, -blättern und -samen"

am 5. November 1998 beim Deutschen Patent- und Markenamt eingereicht.

Die Anmeldung ist auf die Menno Chemie-Vertriebsges mbH in Norderstedt/ Deutschland umgeschrieben worden.

Das angeheftete Stück ist eine richtige und genaue Wiedergabe der ursprünglichen Unterlage dieser Patentanmeldung.

Die Anmeldung hat im Deutschen Patent- und Markenamt vorläufig das Symbol A 01 N 41/04 der Internationalen Patentklassifikation erhalten.

München, den 13. Oktober 1999

**Deutsches Patent- und Markenamt** 

Der Präsident

Im Auftrag

Aktenzeichen: <u>198 50 994.4</u>

Weihmayr



Mittel zur Abwehr und Inaktivierung pathogener Erreger von Pflanzenwurzeln, -stengeln, -blüten, -blättern und -samen

Alljährlich entstehen Gärtnereien, Meristembetrieben und Pflanzenzüchtern große Schäden durch Erreger, die Setzlinge, Jungpflanzen, Mutterpflanzen und Samen infizieren, wodurch diese vernichtet oder unbrauchbar gemacht werden. Gelangen z.B. Viren in eine Anbaukultur, so kann davon ausgegangen werden, daß 100% der Pflanzen geschädigt sind. Es bleibt den Gärtnereien dann nur noch der radikale Weg, die Gesamtkultur zu vernichten.

Auf dem Markt sind spezifisch wirksame Mittel erhältlich, durch die einige Phytopathogene bekämpft werden können, ohne die Vitalität der Pflanze zu beeinflussen. Diese als Pestizide bezeichneten Mittel sind systemisch wirksam, verfügen aber meist nur über ein schmales Wirkungsspektrum.

Ein wesentlich breiteres Wirkungsspektrum bieten hingegen gängige Desinfektionsmittel auf Basis von Aldehyden, Phenolen, Halogenen, Peroxiden und quartären Ammoniumverbindungen. Gelangen diese "Flächendesinfektionsmittel" auf die Pflanze oder werden direkt appliziert, so hat dies immer eine irreversible Schädigung der Pflanze zur Folge. Dies bedeutet, daß derartige Desinfektionsmittel nur auf Bearbeitungsflächen, Stellflächen und Geräten wie z.B. Messern usw. eingesetzt werden können. Danach müssen die Flächen von anhaftenden Wirkstoffresten befreit werden, um die Pflanzen bei nachfolgenden Bearbeitungsgängen nicht zu gefährden.

Jedoch selbst auf Flächen ist eine ausreichende Inaktivierung nicht gewährleistet, da diese Mittel immer wieder beträchtliche Wirkungslücken gegenüber phytopathogenen Erregern aufweisen.



Aus der Lehre der DE OS 32 27 126 und DE OS 32 29 097 ist bekannt, daß bestimmte Kombinationen aus anionischen Tensiden, aliphatischen und aromatischen Carbonsäuren, sowie einige heteroaromatische Säuren imstande sind Viren, Bakterien und Pilze ohne Wirkungslücken, umfassend abzutöten oder zu inaktivieren.

Die gemäß den oben genannten Offenlegungs- und Patentschriften getesteten Keime waren überwiegend humanpathogene Erreger geringer Infektiosität, wie sie u.a. von der Deutschen Gesellschaft für Hygiene und Mikrobiologie (DGHM) und der Deutschen Teterinärmedizinischen Gesellschaft (DVG) als Testkeime empfohlen werden.

Die Anwendung der Lehre auf die hochinfektiösen und resistenten phytopathogenen Erreger, zeigte eine ebenso nachhaltige mikrobizide und virusinaktivierende Wirkung, wie sie bereits an den humanpathogenen Testkeimen dargestellt worden war.

Weitere Versuche zur Pflanzenverträglichkeit mit den gleichen Mitteln ergaben jedoch regelmäßig eine Schädigung der Testpflanzen in Form von schweren Verätzungen, so daß eine Anwendung an der Pflanze als aussichtslos erschien.

Überraschend wurde nun gefunden, daß die Verwendung bestimmter Säure- Tensid- Kombinationen in Gegenwart von Glykolen, den bisher bestehenden Mangel bei der Bekämpfung von phytopathogenen Erregern überwindet und bei direkter Anwendung auf der Pflanze, unter Beibehaltung einer ausgeprägten bakteriziden, fungiziden und viruziden Wirksamkeit, die Pflanzenzellen (Wurzeln, Stengel, Blätter, Blüten und Früchte) in der Anwendungskonzentration unbeschädigt läßt.



Gegenstand der vorliegende Erfindung sind Mittel zur Behandlung von Pflanzen und deren Umfeld mit dem Ziel, phytopathogene Bakterien, Pilze, Viren und Viroide abzutöten, bzw. deren Verbreitung zu verhindern. Auch bereits auf Pflanzen befindliche Pathogene können diese Mittel durch Benetzen von Wurzeln, Stengeln, Blättern und Blüten abtöten oder inaktivieren (Viren), ohne die Pflanzenzellen zu schädigen. Das biologische Verhalten der Pflanze wird durch die Behandlung ebenfalls nicht verändert. Bearbeitungsbereiche im Umfeld der Pflanze (z.B. Tische, Messer, Stellflächen), die zu einer Kontaminierung führen können, werden damit ebenfalls nachhaltig von Schadorganismen befreit, ohne daß anschließend phytotoxische ückstände entfernt werden müssen.



#### Patentansprüche

- 1. Desinfektionsmittel zur Bekämpfung und Inaktivierung von phytopathogenen Erregern zur Anwendung an der Pflanze und im Umfeld der Pflanze, auf Basis eines synergistisch wirksamen Gemisches, das anionaktive Tenside, aliphatische Carbonsäuren, aromatische Carbonsäuren, Mono-, Di-, und Triglykole, Hydrotropierungsmittel und primäre und/oder sekundäre, aliphatische, einwertige Alkohole der Kettenlänge C2-C8 als Lösungsmittel enthalten kann, dadurch gekennzeichnet, daß
- a) sie synergistisch wirksame mikrobizide Kombinationen aus aliphatischen und aromatischen Carbonsäuren, vorzugsweise Methansäure, Ethansäure, Propansäure, Hydroxyethansäure, 2-Hydroxypropionsäure, Oxoethansäure, 2-Oxopropionsäure, 4-Oxovaleriansäure, Benzoesäure, o-, m-, p-Hydroxybenzoesäuren, 3,4,5-Tri-Hydroxybenzoesäure, einzeln oder gemischt, in Verbindung mit Alkylsulfonaten und /oder Alkylarylsulfonaten und deren Natrium-, Kalium- und Ammoniumsalze, mit primären Ketten der Länge C8-C18 als anionische Tenside enthalten
  - b) sie Ethylenglykol, Propylenglykol, 2,3-Butylenglykol, Diethylenglykol [2,2'-Dihydroxy-diethylether], Triethylenglykol [1,2-Di-(2-hydroxyethoxyl)-ethan] einzeln oder im Gemisch miteinander enthalten
  - c) sie Toluolsulfonat und/oder Cumolsulfonat als Natrium- oder Kaliumsalz und einwertige Alkohole als Lösungsmittel einzeln oder als Gemisch enthalten.
  - 2. Desinfektionsmittel nach Anspruch 1, dadurch gekennzeichnet, daß das Gewichtsverhältnis der aliphatischen Säuren (A) zu den aromatischen Säuren (B) zwischen 1:9 und 9:1 betragen kann und deren Summe zwischen 5 und 40 Gew. % bezogen auf das Gesamtgewicht des Desinfektionsmittelkonzentrats liegen kann.



- 3. Desinfektionsmittel nach Anspruch 1 und 2, dadurch gekennzeichnet, daß das Gewichtsverhältnis der Alkylsulfonate und
  /oder Alkylarylsulfate und deren Salze (C) mit den Säuren
  (A+B) im Verhältnis C: (B+A) = 1:9 und 9:1 liegen kann und
  deren Summe zwischen 10 und 60% bezogen auf das Gesamtgewicht des Desinfektionsmittelkonzentrats betragen kann.
- 4. Desinfektionsmittel nach Anspruch 1, dadurch gekennzeichnet, daß der Gewichtsanteil der Glykole bezogen auf das Gesamtgewicht des Desinfektionsmittelkonzentrats zwischen 10 und 40 Gew. % betragen kann.
- 5. Desinfektionsmittel nach Anspruch 1, dadurch gekennzeichnet, daß das Gewichtsverhältnis der Hydrotropierungsmittel Toluolsulfonat und Cumolsulfonat, deren Natrium- oder Kaliumsalze, einzeln oder im Gemisch miteinander zwischen 5 und 40 Gew.% bezogen auf das Gesamtgewicht des Desinfektionsmittelkonzentrats liegen kann.
  - 6. Desinfektionsmittel nach Anspruch 1, dadurch gekennzeichnet, daß das Gewichtsverhältnis der einwertigen Alkohole einzeln oder im Gemisch miteinander zwischen 5 und 60 Gew. % bezogen auf das Gesamtgewicht des Desinfektionsmittelkonzentrats liegen kann.
  - 7. Verwendung der Desinfektionsmittel nach einem der Ansprüche 1 bis 6 zur Bekämpfung von phytopathogenen Bakterien, Pilzen, Viren und Viroiden auf der vitalen Pflanze und deren Umfeld.
  - 8. Verwendung der Desinfektionsmittel nach einem der Ansprüche 1 bis 6 in wässrigen, verdünnten Lösungen, die zwischen 0,5 und 10 Gew.% des Desinfektionsmittelkonzentrates enthalten können.



# Beispiele zur Formulierung der Mittel gemäß Patentanspruch

Nachfolgende Beispiele sollen den Patentanspruch erläutern, stellen aber keine Begrenzung des Anspruchs dar.

#### Beispiel 1)

Komponenten	Gewichtsanteile (%)
Alkylarylsulfonat-Kalium	8,50 Gew. %
Propandiol-1,2	20,50
Toluolsulfonat-Kalium	10,00
p-Hydroxybenzoesäure	6,90
Hydroxyethansäure	3,80
Propanol-2	28,00
Wasser (entsalzt)	18,50
Beispiel 2)	
Alkylsulfonat-Kalium	10,00 Gew. %
Ethandiol-1,2	15,00
Cumolsulfonat-Kalium	10,00
p-Hydroxybenzoesäure	6,90
Oxoethansäure	7,00
Propanol-1	15,00
Propanol-2	15,00
Wasser (entsalzt)	18,50

#### Beispiel 3)

Alkylarylsulfonat-Kalium	12,00	Gew. %
Ethandiol-1,2	18,00	
Cumolsulfonat-Kalium	8,00	
Benzoesäure	7,00	
2-Hydroxypropionsäure	7,00	
Propanol-1	20,00	
Propanol-2	15,00	
Wasser (entsalzt)	13,00	



## 'Beispiel 4)

Komponenten	Gewichtsanteile (%)
Alkylsulfonat (C8-C18) -Kalium	7,00 Gew. %
Alkylsulfonat (C12) -Kalium	3,00
Ethandiol-1,2	12,00
Cumolsulfonat-Kalium	11,50
Benzoesäure	9,00
2-Hydroxyethansäure	4,50
Propanol-1	15,00
Propanol-2	15,00
Wasser (entsalzt)	23,00

### Beispiel 5)

lkylarylsulfonat-Natrium	12,00	Gew.	ક
Cumolsulfonat-Natrium	8,00		
o-Hydroxybenzoesäure	9,50		
2-Hydroxypropionsäure	5,00		
Propanol-1	22,00		
Propanol-2	20,00		
Wasser (entsalzt)	23,50		



#### Bakterizide Wirkung auf der Pflanze (Bi test)

A Jungpflanzen (Pelargonien und Begonien) wurden mittels Sprühverfahren mit Xanthomonas campestris kontaminiert. Ein Blattfläche von 1 cm² wies nach der Kontamination 10<sup>4</sup> KBE auf.

Eine Stunde nach der Inokulation erfolgte, ebenfalls im Sprühverfahren, eine Behandlung mit Beispiel 4 in Konzentrationen von: 1,0%; 2,0% und 3,0%.

Eine weitere Stunde nach der Behandlung wurden Proben entnommen. Die Keime der behandelten bzw. der unbehandelten Kontrollen (ohne Beispiel 4) wurden mittels Ultraschall (Waschflüssigkeit von 0°C) von den Blättern entfernt und deren Anzahl bestimmt.

B Pelargonien und Begonien wurden mittels Sprühverfahren mit Beispiel 4 behandelt.

24 Stunden nach der Behandlung mit Beispiel 4 erfolgte, ebenfalls im Sprühverfahren, die Kontamination mit Xanthomonas campestris (s.o. unter A)

Eine Stunde nach der Kontamination wurden Proben entnommen. Die Keime der behandelten bzw. der unbehandelten Kontrollen (ohne Beispiel 4) wurden mittels Ultraschall (Waschflüssigkeit von 0°C) von den Blättern entfernt und deren Anzahl bestimmt.

Verätzungen Läsionen an den Blatträndern und den Blattspreiten Keimreduktion und Blattverträglichkeit sind in der folgenden Tabelle aufgeführt:

	·	Pelar	Pelargonien		nien
A	Konzentration (Vol.%)	Keimreduktion	Toxische Er- scheinungen an Blättern	Keimreduktion	Toxische Er- scheinungen an Blättern
	1,0% Beispiel 4	97%; 93 %	keine Läsionen	<99%	keine Läsionen
	2,0% Beispiel 4	100%; 99,5%	keine Läsionen	99,9%	keine Läsionen
	3,0% Beispiel 4	100%; 99,9%	wenige Blattrand- läsionen	99,9%	geringe Läsio- nen an Blattra- nändern
	1,0% Beispiel 5	98%; 95 %	Läsionen an den Blatträndern	99,5%; 99,7%	Läsionen an den Blatträndern und Blattspreietn
	2,0% Beispiel 5	100%;100%	Läsionen an den Blatträndern und den Blattspreiten	99,9%; 99,9%	Verätzungen an den Blatträndern und den Blatt- spreiten
	3,0% Beispiel 5	100%; 94%	viele Läsionen an den Blatträndern und den Blatts- preiten	100%;100%%	Verätzungen an den Blatträndern und den Blatt- spreiten
В	1,0% Beispiel 4	98%	keine Läsionen	95%	keine Läsionen



## Pflanzenverträglichkeit

Maximale tolerierbare Konzentrationen der Formulierungsbeispiele 2, 4 und 5 an Pflanzenorganen

			Phalaenopsis <sup>1</sup>		
Beispiele	Pflanzenorgan	Schädigung	Läsio BR	nen BS	
1,0% Beispiel 2	Blüten	0			
2,0% Beispiel 2		0			
3,0% Beispiel 2		0			
1,0% Beispiel 2	Blätter	0	0	0	
2,0% Beispiel 2		0	0	0	
3,0% Beispiel 2		+	+	0	
1,0% Beispiel 4	Blüten	0			
2,0% Beispiel 4		0			
3,0% Beispiel 4		0			
1,0% Beispiel 4	Blätter	O	0	0	
2,0% Beispiel 4		0	0	0	
3,0% Beispiel 4		+	++	0	
1,0% Beispiel 5	Blüten	++			
2,0% Beispiel 5		++	· · · · · · · · · · · · · · · · · · ·		
3,0% Beispiel 5		+++	+++	+++	
1,0% Beispiel 5	Blätter	+	++	++	
2,0% Beispiel 5		. ++	+++	++	
3,0% Beispiel 5		+++	+++	+++	

Läsion. = Läsionen

+++ = sehr viele / sehr stark geschädigt ++ = viele / stark geschädigt

+ = wenige / wenig geschädigt 0 = keine / nicht geschädigt

BR = Blattränder BS

= Blattspreiten

<sup>&</sup>lt;sup>1</sup> Orchideenart



Die Prüfung auf eine ausreichende Inaktivierung von phytopathogenen Erregern führte zu folgenden Ergebnissen

1. Bakterizide Wirkung von Beispiel 1-5 im Laborsversuch nach der "Richtlinie 16-4 für die Prüfung von Pflanzenschutzmitteln zur Desinfektion im Zierpflanzenbau" der Biologischen Bundesanstalt für Land-und Forstwirtschaft (Braunschweig, 1986)

Erforderliche Einwirkungszeiten von Beispiel 1-5 zur Abtötung der angegebenen Bakterienstämme

Beispiele	Xantho- monas pelargonii	Pseudomo- nas solanaceum	Erwinia amylovora
Leitungswasser	keine Wirk-	keine Wirk-	keine Wirk-
Kontrolle	samkeit	samkeit	samkeit
1,0% Beispiel 1	1 Min	1 Min	5 Min
1,0% Beispiel 2	1 Min	1 Min	1 Min
1,0% Beispiel 3	5 Min	5 Min	15 Min
1,0% Beispiel 4	1 Min	1 Min	1 Min
1,0% Beispiel 5	1 Min	1 Min	1 Min

2. Fungizide Wirkung von Beispiel 1-5 im Laborsversuch nach der "Richtlinie 16-4 für die Prüfung von Pflanzenschutzmitteln zur Desinfektion im Zierpflanzenbau" der Biologischen Bundesanstalt für Land-und Forstwirtschaft (Braunschweig, 1986)

Erforderliche Einwirkungszeiten der Beispiele 1-5 zur Abtötung der angegebenen Pilzprüfstämme

Beispiel	Fusarium oxysporum	Thielaviopsis basicola	Phythoph- tora sp	Cylindro- cladium scoparium
Leitungswasser Kontrolle	keine Wirk- samkeit	keine Wirk- samkeit	keine Wirk- samkeit	keine Wirk- samkeit
1,0% Beispiel 1	16 h	>16 h	1 h	>16 h
2,0% Beispiel 1	4 h	4 h	1 h	>16 h
1,0% Beispiel 2	4 h	4 h	1 h	>16 h
2,0% Beispiel 2	1 h	1 h	5 Min.	16 h
1,0% Beispiel 3	4 h	16 h	1 h	16 h
2,0% Beispiel 3	4 h	4 h	30 Min.	4 h
1,0% Beispiel 4	1 h	4 h	30 Min.	16 h
2,0% Beispiel 4	1 h	1 h	15 Min.	4 h
1,0% Beispiel 5	1 h	4 h	1 h	16 h
2,0% Beispiel 5	1 h	1 h	5 Min.	16 h



Erforderliche Einwirkungszeiten von Beispiel 1-5 zur Inaktivierung der angegebenen Virenstämme (Suspensionsversuch)

Desinfektions-	TMV	PVY	PFBV	CNIV	ORGV	DCTTVA
mittel (Konz.)	11010	PVI	Prdv	CNV	ORSV	PSTVd
Leitungswasser	keine	keine	keine	keine	keine	keine
Kontrolle	Wirk-	Wirksam-	Wirksam-	Wirksam-	Wirksam-	Wirk-
	samkeit	keit	keit	keit	keit	samkeit
1,0% Beispiel 1	16 h	16 h	4 h	16 h	4 h	4 h
2,0% Beispiel 1	16 h	4 h	1 h	4 h	1 h	1 h
3,0% Beispiel 1	16 h	4 h	1 <b>h</b>	4 h	1 h	<1 h
1,0% Beispiel 2	>16 h	16 h	4 h	16 h	l h	4 h
2,0% Beispiel 2	16 h	4 h	l h	4 h	<1 h	1 h
3,0% Beispiel 2	4 h	4 h	l h	4 h	<1 h	-lh
1,0% Beispiel 3	>16 h	16 h	4 h	1 h	4 h	4 h
2,0% Beispiel 3	16 h	4 h	l h	<1 h	4 h	1 h
3,0% Beispiel 3	16 h	4 h	1 h	<1 h	1 h	1 h
1,0% Beispiel 4	4 h	4 h	1 h	<1 h	4 h	1 h
2,0% Beispiel 4	4 h	1 h	< 1 h	<1 h	1 h	< 1 h
3,0% Beispiel 4	1 h	1 h	< 1 h	<1 h	1 h	< 1 h
1,0% Beispiel 5	4 h	4 h	1 h	< h	4 h	1 h
2,0% Beispiel 5	4 h	4 h	1 h	<1 h	1 h	1 h
3,0% Beispiel 5	1 h	1 h	< 1 h	<1 h	1 h	< 1 h
			i			

TMV = Tabakmosaicvirus

**PVY** = Potato virus Y Potyvirus

PFBV = Pelargonium flower break carmovirus

CNV = Cucumber necrosis tombuvirus
ORSV = Odontoglossum ringspot virus
PSTVd = Potato spindle tuber viroid



Die Prüfung auf eine ausreichende Inaktivierung von phytopathogenen Erregern führte zu folgenden Ergebnissen

1.Bakterizide Wirkung von Beispiel 1-5 im Laborsversuch nach der "Richtlinie 16-4 für die Prüfung von Pflanzenschutzmitteln zur Desinfektion im Zierpflanzenbau" der Biologischen Bundesanstalt für Land-und Forstwirtschaft (Braunschweig, 1986)

Erforderliche Einwirkungszeiten von Beispiel 1-5 zur Abtötung der angegebenen Bakterienstämme

Beispiele	Xanthomonas pelargonii	Pseudomonas solanaceum	Erwinia amylovora
Leitungswasser	keine Wirk-	keine Wirk-	keine Wirk-
Kontrolle	samkeit	samkeit	samkeit
1,0% Beispiel 1	1 Min	1 Min	5 Min
1,0% Beispiel 2	1 Min	1 Min	1 Min
1,0% Beispiel 3	5 Min	5 Min	15 Min
1,0% Beispiel 4	1 Min	1 Min	1 Min
1,0% Beispiel 5	1 Min	1 Min	1 Min

. •